



TITLE:

人工放射能の化学への應用（其一）

AUTHOR(S):

水渡, 英二

CITATION:

水渡, 英二. 人工放射能の化学への應用（其一）. 物理化学の進歩 1942, 16(1): 1-17

ISSUE DATE:

1942-01-30

URL:

<http://hdl.handle.net/2433/46299>

RIGHT:

紹介

人工放射能の化学への應用 (其一)

水 渡 英 二*

G. T. Seaborg (California 大學) は "Artificial Radioactivity" と題して *Chemical Reviews*¹⁾ 誌上に綜説を發表してゐる。その譯出を骨子とし、化學的に興味ある部分は原報により補足し、更にその後の研究をも附加して御紹介する。

〔I〕 緒 言

〔I〕 人工放射能の一般的性質

〔II〕 放射線の検出法

〔IV〕 人工放射性元素の生成反應

- 1) 中性子反應
- 2) 重陽子反應
- 3) α -粒子 (He-イオン) 反應
- 4) 陽子反應
- 5) γ -線反應

6) U- 及び Th-分裂

〔V〕 人工放射性物質の分離並に濃縮法

(A) 遮障體を用ひる化學的分離法

(B) 遮障體を用ひない分離法 (物理的)

〔VI〕 人工放射性元素表

〔VII〕 人工放射性元素の化学への應用 (次號)

〔I〕 緒 言

人工放射能は1934年 Curie 及 Joliot²⁾ により發見された。彼等は Po より放射される α -粒子により Al を衝擊する際に放射される陽電子 (positron) が、 α -粒子の衝擊を止めた後も存続する事を觀察した。しかもその強度は丁度普通の放射性元素 (天然) と同じく一定の半減期 (3分) を以つて對數的に減衰する。この發見に續き直ちに多數の人工放射性元素が多くの研究家により、主として人工的に作られた高速度荷電粒子の衝擊を用ひて得られた。即ち多くの物質は次の如き種々の高電壓装置により加速された陽子 (proton, p) 又は重陽子 (deuteron, d) の衝擊を受け放射性が與へられる。Cockcroft, Gilbert 及 Walton³⁾ の電壓加重結線 (voltage-multiplier circuit) の應用, Lawrence 一派⁴⁾ の磁氣共鳴加速器即ち "サイクロトロン", Crane 及 Lauritsen⁵⁾ の cascade 變壓器による電壓源, 及び Tuve 及 Hafstad⁶⁾ の靜電的發電機等が應用された。更に多くの人工放射性元素が1934年及び1935年に Fermi 一派⁷⁾ の研究により得られた。彼等は中性子 (neutron, n) の衝擊を用ひた。この方法は荷電粒子の場合の如く原子核のクーロム場の障礙がない爲、殆んど總ての元素に放射能が與へ得られた。然して1935年の終りに既に100餘の人工放射性元素が知られ、⁸⁾ 其の後重陽子、中性子及び陽子更らに高エネルギーの α -粒子及び γ -線による研究にて次第にその數を増し、現今では約400種に達せんとしてゐる。特にサイクロトロンにより高電壓、強電流が利用される様になり、原子番號1より85 (及び Th, U) までの總ての元素の放射性同位體が發見された。この内特に重要と考へられるものは、追跡手 (tracer) として廣く應用價值のある Alvarez 及 Cornog¹⁵⁾ の放射性水素 (H^3 , 半減期約33年) 並びに Ruben 及 Kamen¹⁶⁾ により最近 (1940) 發見された長生命の放射性炭素 (C^{14} , $\geq 10^4$ 年) である。茲には、かゝる人工放射能の化学への應用を記述する。勿論

* 京都帝國大學理學部化學教室。

この方面の研究は端緒であるが、今後興味ある肥沃なる新分野が展開する事を暗示する點が多いと思ふ。

先づ最初に人工放射性元素の一般性質、生成法及び濃縮法並びに放射能の検出法を簡単に記し、最後に化学への應用に就き數項に分ち御紹介しよう。

〔II〕 人工放射能の一般的性質

人工放射性元素の放射能減衰も天然放射性元素と同様に對數法則に従ふものであり、各元素の減衰速度は半減期($T_{1/2}$, 最初の原子数の半分に成るまでに要する時間)で以つて表はされる。定状態の衝撃を受けてゐる際の放射能の増大は次の如き増大法則に従ふ。即ち、飽和状態の原子数を1とすれば、 t 時間後の放射性原子の数は $1 - e^{-\frac{0.693}{T_{1/2}}t}$ で表はされる。活性化の時間が半減期に比べ充分長ければ、放射能は最早活性化により増加しない飽和の値に達する。

人工放射性元素より出る放射線の性質はよく知られた U-系列, Ac-系列及び Th-系列の天然放射性元素より出る放射線とよく類似してゐる。主として、單一減衰 (single decay) であるが、最初の減衰生成物も亦放射性である様な連鎖減衰 (chain decay) の例も少くない。崩壊中に放出される β -粒子のエネルギーは天然の場合と同様に一定の上限界を有する連続譜を示し、このエネルギー上限界は半減期に略反比例する。(Sargent の關係¹⁷⁾)。天然放射能の際によく存在する α -粒子 (He^{++}) 放出による減衰は人工放射能の場合には甚だ稀である。天然放射性元素より放出する β -粒子は負のみであるが、人工放射性元素には負の β -粒子 (電子) を放出するものも、正の β -粒子 (陽電子) を放出するものもあり、又兩者共に放出して減衰するものも存在する。天然放射性元素の場合にも見られた如く、ある種の崩壊に際しては γ -線 (高エネルギーの電磁波) を伴ひ、この γ -線は大なり小なり内部變換*を起してゐる。 γ -線のイオン化は少ないから同一エネルギーの β -粒子よりも透過力が強い。

人工放射性元素の場合にのみ觀られる陽電子放出の代りに軌道電子捕獲による減衰が考へられる。湯川氏¹⁸⁾等は β -線放出の Fermi 説¹⁹⁾に基き不安定な核が核外電子の捕獲により安定化すると想像した。かくる K-電子捕獲**による減衰は最初に Alvarez により放射性 Ga^{67} (83 hr.) に發見されたが、其の後多數の例が見出されてゐる。K-電子捕獲による減衰には、内部殻の電子空位を満たされねばならぬから X-線、即ち Auger 電子の放出を伴ふが、それ以外には何ら他の放射線を伴はなくてもよいと考へられる。しかるに多くの例の示す處に依れば、生成核は勵起状態に置かれをり γ -線或ひは内部變換電子 (線譜**) 又はその兩者を放出して基本状態にもどるものである。或る放射性元素は陽電子放出のみにより、或るものは電子捕獲のみにより、又或るものはその兩者により減衰する。

放射性物質の今一つの興味ある問題は、核異性體 (nuclear isomers) である。これは人工放

* "internal conversion" 核内より放出された γ -線がその原子の核外の電子を刺戟して、 γ -線の代りにその二次的の β -粒子を放出する場合を云ふ。この放出電子のエネルギー (飛行) は γ -線のエネルギーと電子の結合エネルギーの差に等しい。

** "K-electron capture" 核により捕獲される軌道電子の大部分は K-電子殻に屬するから、かく云はれる。

*** "line of electrons" 例へば γ -線の内部變換を受けた K-電子殻から放出される單一エネルギーの電子を云ふ。(γ -線のあるものは L-, M-電子殻にも轉換される。) β -粒子減衰の β -線が非常に廣い連続譜を示すに對して、これは線譜を示す事より兩者區別される。

射能のみに特別なものではないが、これに就いてよく研究された。核異性體とは同一原子番号 (Z) と同一原子量 (A) とを有する所謂同重同位 (isotopic isobars) であるが、エネルギー量と安定度を異にする。即ち、同一種の核に高位状態と基本状態との二つの異なるエネルギー状態が存在する。かゝる核異性體の存在に對し提出された Weizsäcker²⁰⁾ の説によれば高位の準安定状態の長生命はそれと基本状態との間の角運動量の相違に依ると考へられてゐる。この大きなスピンの差は高位状態より低位状態への變遷を禁止する事は丁度光の場合の禁制線と同様である。各異性體は放射性にて夫々特有の半減期を有する β -放出により減衰する。或ひは、高位状態に相當する異性體は β -放射能を有するが、基本状態に相當する異性體は安定である。又或る場合には異性體が互に關係してゐる。即ち、高位状態のものが β -粒子を放出して隣接せる (原子番号の一つ低い) 同重體に減衰するより寧ろ、 γ -線を放出して基本状態の異性體に移る。これを異性核轉移 (isomeric transition) と云ふ。かゝる場合元の元素を母異性體 (parent isomer) と云ひ、生ずる元素を娘異性體 (daughter isomer) と云ふ。かゝる人工放射性元素に於ける核異性變換は 1935 年 Kurlchatow 等²¹⁾ により最初の確證がなされたが、1937 年 Snell²²⁾ と Bothe 及 Gentner²³⁾ が同時に放射性臭素の 18 分のものと 4.4 時間のものが原子量 80 の核異性體である事を示した。この場合後者が異性核轉移により前者となる。

要するに、人工放射性元素の放射線には次の六つの型がある。

| | |
|------------------------------|------------------------------|
| 負の β -粒子 (β^-) | 正の β -粒子 (β^+) |
| γ -線 (γ) | 内部變換電子 (e^-) |
| K-電子捕獲 (K) | 異性核轉移 (I, I') |

〔III〕放射線の検出法

放射性物質よりの放射線の強度測定に用ひられる装置には種々のものがある。(Livingston 及 Bethe の綜説²⁴⁾がある。) 茲ではこの方面に現今用ひられてゐるものを簡単に紹介する。放射線の種類及びエネルギーによつて適當な感度と安定度の装置を選ぶべきである。又、測定せんとする放射線に對する吸収曲線が重要な問題である。これは特に放射線が非常に低いエネルギーを有する即ち非常に柔かな場合に必要である。なんとすれば、かゝる場合には試料中の自己吸収の影響に對し特に注意をはらふべきで、この爲め適當な考案をすべきである。その主な方法は次の三つのものである。

(1) 驗電器 (electroscope) を用ひる法

この方面の研究に廣く用ひられ、しかも最も簡単なものとして、Lauritsen²⁵⁾ の改良した石英驗電器 (quartz-fiber electroscope) がある。驗氣器は普通に瓦斯體主として空氣の満たされた電離箱 (ionization chamber) の内部に置かれ、石英線の動く速度を測定する。約 200 volt の直流電源があればよく、すべての種類の放射線の検出が出来る。しかしその感度は他の検出器に比べ低く、microcuries (10^{-6} curies*) の強度の放射線に適し、1%或ひは 0.1%の感度を有する。

(2) 電氣計 (electrometer) を用ひる法

* "curie" 最初 1 g の Ra と平衡状態にあるラドン量に名付けられた。現今は一般に放射能の強度の單位に用ひられる。即ち、1 curie とは 1 g の Ra が 1 秒間に崩變する数 (3.7×10^{10}) を示す。

すべての種類の放射線に用ひられ前者より感度の高いものに、電離函にある種の電気計を用ひて得られる。種々の電離函が Amaldi 及 Fermi²⁶⁾, Barnes²⁷⁾, Montgomery 及 Montgomery²⁸⁾ 等により設計された。これらは 300~400 volts の直流電源を要し、薄い窓がある爲、普通一氣壓の瓦斯を入れられるが、 γ -線の場合は高壓にされる。又、非常に柔かい放射線の場合には試料は電離函の中に入れられる。電気計としては感度の高い (Edelmann 電気計, Perucca 電気計) ものを用ふれば充分使用出来る。真空管により増幅し鋭敏なガルバノメーターを用ふれば、 10^{-4} microcuries の程度まで測定出来る。

以上は放射粒子の總量を測る (integrating type) のであるが、Dunning²⁹⁾ は交流(正)高増幅器を利用して、陽子、 α -粒子等の電離作用の強い単一粒子の検出し得る電離函を考案した。しかしこれでは電子又は γ -線は記録出来ない。

(3) 測數計 (counter)

最初 Geiger³⁰⁾ により尖端測數計 ("point" counter—Geiger counter) が作られ、後改良された Geiger-Müller 計數管³¹⁾ ("tube" counter, "Zählrohr") が現今廣く用ひられてゐる。すべての電離性の粒子(単一粒子)を検出し得る最も感度の高い検出器にて 10^{-6} microcuries の弱い放射源よりの粒子も検出し得る。Geiger-Müller 計數管は金屬製の圓筒とその中心にはられた互に絶縁された金屬線とよりなり、減壓の空氣又はアルゴンが滿され外筒に 500~5000 volts の負の電壓がかけられる。電離性粒子がこの中を通過すれば、兩者の間の絶縁が一時破られるから、これを交流(正)増幅器により増幅して記録装置に導く様になつてゐる。これによる多くの研究はあるが、その構造及び操作は未だ甚だ困難なものである。Neher³²⁾ は種々の型の計數管に就き述べてをり、Hamblin 及 Johnson³³⁾ は計數管に關する議論を提出してゐる。Olson, Libby, Long 及 Halford³⁴⁾, Bale, Haven 及 Le Fevre³⁵⁾ は溶液中の放射性物質よりの放射線に用ひられる計數管を考案した。

若し放射線のエネルギーが非常に低い場合に、放射性元素が瓦斯體なれば普通の電離函³⁶⁾ 又は Geiger-Müller 計數管^{16, 30)} の中に入れればよいが、固體の場合それを内部に入れ得る様な計數管を Libby⁴¹⁾ 等⁴²⁾ が考案した。("screen-wall" counter と云はれる。) 勿論、低エネルギーの放射能でも γ -線を作ふものは内部に入れる必要がない。又、低電壓で働き得る計數管を Geiger 及 Klemperer⁴³⁾ が作つた ("proportional" counter⁴⁴⁾)。しかしこれは陽子又は α -粒子の如き電離作用の強い放射線のみ検出し得られる。

以上の装置はいづれも放射線のエネルギーを決定するに必要な Al による吸収曲線を得るに用ひ得られる。 β -粒子のエネルギーの上限界は Feather⁴⁵⁾ 關係式 $R=0.543 E-0.160$ で表はされる。茲に R (Al の厚さ) は 1 cm^2 の gm 數にて示され、エネルギー E は Mev 單位である。 γ -線に對しては Gentner の表⁴⁶⁾がある。

更に詳細に放射線の性質及びエネルギーを検する装置として次のものがある。

(a) 分光計又は分光寫眞器⁴⁷⁾ (spectrometer or spectrograph)

β -粒子又は γ -線よりの二次電子、即ち内部轉換電子を電場又は磁場にて曲げ、そのエネルギーを検する。

(b) "coincidence counter" ^{48, 49)}

二つ以上の計數管を組合せたものにて γ -線のエネルギー決定に用ひる。

(c) Wilson 霧函⁵⁰⁾ (expansion chamber, cloud chamber) 電離性粒子の進路に沿ひ凝縮した

水滴を観測する。

この他 Allen⁵¹⁾ の考案した二次電子増幅管があるが、いずれも核物理に於ける特別の用途に用ひられる。

[IV] 人工放射性元素の生成反應

現今、元素には原子番號 (atomic number, Z) 1~92, 質量數 (mass number, A) 1~238 の間に 286 個の安定同位元素 (stable isotope) が知られてゐる。(本誌 14 卷 98 頁安定同位元素の表参照) 總ての人工放射性元素はこれらの同位元素から種々の衝擊粒子—中性子 (n), 重陽子 (d), α -粒子 (He^{++} イオン), 陽子 (p), 高エネルギーの γ -線及び X -線等の作用により得られる。出来た人工放射性元素の質量數が若し同一元素の安定同位體のそれよりも小なる場合は陽電子放出 (β^+) 或ひは K -電子捕獲により安定状態に移り, 若し大なる場合は負の β -粒子放出 (β^-) により安定となる。若し兩者の間にある場合は普通負の β -粒子放出である。例へば, 原子番號 7 の窒素 (安定同位元素は ${}^7\text{N}^{14}$ と ${}^7\text{N}^{15}$) に就いて見るに, 人工放射性の ${}^7\text{N}^{13}$ (半減期, 9.9 min) は β^+ を放出し安定な ${}^6\text{C}^{13}$ となり, ${}^7\text{N}^{16}$ (8 sec) は β^- を放出して安定な ${}^8\text{O}^{16}$ となる。又, 原子番號 35 の臭素 (安定同位元素は ${}^{35}\text{Br}^{79}$ と ${}^{35}\text{Br}^{81}$) を考へるに, ${}^{35}\text{Br}^{78}$ (6.4 min) は β^+ を放出して安定な ${}^{34}\text{Se}^{78}$ に, ${}^{35}\text{Br}^{82}$ (34 hr) 及び ${}^{35}\text{Br}^{83}$ (140 min) は β^- を放出して夫々安定な ${}^{36}\text{Kr}^{82}$ 及び ${}^{36}\text{Kr}^{83}$ になる。更に ${}^{35}\text{Br}^{80}$ (18min) は β^- を放出して安定な ${}^{36}\text{Kr}^{80}$ となる。

放射能の性質を決定するには, 放射性同位元素の原子番號と質量數とを決定する必要がある。前者は化學的分離 (後述) により決定される。後者は化學的分離により核反應の型式が決定された後, 受撃元素 (target element) の安定同位元素の質量數より導かれる。これには屢々 "cross bombardment" の方法, 即ち種々の異つた核反應による放射性同位元素の生成の方法が用ひられる。よりよき方法は單一分離された同位元素の衝擊を行ふ事である。最近, 同位元素の分離は Urey 一派⁵²⁾, Clusius 及 Dickel⁵³⁾, Beams 一派⁵⁴⁾ により發展したが, 例へば Kennedy 及 Seaborg⁵⁵⁾ は分離された鹽素同位元素 (Cl^{35} 及び Cl^{37}) を衝擊して放射性鹽素の符號決定を行つた。衝擊後の同位元素の分離が出来れば最もよい方法である。しかしながら, 放射性物質の化學或ひは生物學方面での使用に際しては, 質量數が決定出来なくても原子番號が解つてをれば充分用ひ得られる。

若し, 在存比 (relative abundance) の小さい同位元素より得られる放射性同位元素の場合には, 分離された同位元素の衝擊によつて非常に有効に得られる。これは實際上重要な問題にて, 例へば炭素 (C^{12}) の重陽子衝擊によつて得られる長生命の放射性炭素 (C^{14} , $>10^3$ 年) の場合に示された。普通の炭素 (98.9% C^{12} +1.1% C^{13}) より作られる C^{14} は非常に弱い。Urey 等の實驗にて得られた殆んど純粹な重炭素 (ca 100% C^{13}) の衝擊により長生命の放射性炭素の収量は約 100 倍にし得る。

以下, 人工放射性元素の生成に用ひられる核反應の種々の型式を述べる。(勿論, これらの反應は安定同位元素の生成にも用ひられる。) 反應の収量に關しては極く定性的に附加してをく。(詳細な理論的取扱ひは最近 Weisskopf 及 Ewing⁵⁶⁾ が發表してゐる。)

衝擊粒子と原子核との衝突の結果起る變換の機構に關しては Bohr⁵⁷⁾ の次の如き考へがある。即ち, (1) 粒子が核に融け込み中間的の準安定化合核の生成, と (2) この核の反應終結核への崩壊, との二つの無關係の過程により進む。

1. 中性子反應

中性子源には二種ある。(1) 人工的, (2) 天然放射性元素よりの放射線を應用する方法。後者は核反應 $\text{Be}^9 (\alpha, n) \text{C}^{12}$ を應用するもので, Ra, Rn 又は Po の如き α -粒子放出體と Be 粒末との混合體である。この方法にて發生する中性子のエネルギーは Rn- α -粒子のエネルギー約 13 Mev.** 以下の連續的な値を有する。單一エネルギーの γ -線と Be 又は D とにより單一エネルギーの中性子 “photo-neutron” が得られる。そのエネルギーは天然放射性元素よりの γ -線を用ひる時には、數百 kilovolts である。

人工的中性子源としては高速度の荷電粒子を種々の元素に衝擊して得られる。その際の中性子のエネルギーは衝擊粒子のエネルギーに關係するが、それは生成に用ひた核反應の種類にも大いに關係するので、實驗條件を考慮して概略的な値しか言へぬ。主として用ひられる中性子生成反應は次の如きものである。

(a) Be-D 源. 5~10 Mev. の重陽子を Be に衝擊す。得られる中性子のエネルギーは 13 Mev. に達す。若し 16 Mev. の D を用ふれば 20 Mev. に達す。

(b) D-D 源. 數百 kilovolts の重陽子を重水素に衝擊す。2.5~3 Mev. の狭いエネルギー範囲の中性子が發生す。

(c) Li-D 又は B-D 源. 得られる中性子のエネルギーは 20 Mev. に達する。

中性子はその有するエネルギーにより大略次の如く分類される。

(a) 速い中性子 “fast” neutrons. 10~20 Mev.

(b) 中間速中性子 “medium fast” neutrons. $10^3 \sim 10^6$ ev.

(c) 共鳴中性子 “resonance” neutrons. 0.026 ev. より少し高い。(極く少ないエネルギー範圍に於てのみ、共鳴的に核に吸收される。)

(d) 遅い中性子即ち熱中性子 “slow” or “thermal” neutrons. 0.026 ev. 以下 (速い中性子をパラフィンや水等の含水素物質を通過せしめ水素核と幾回も衝突して熱速度となつたもの、多くの核に吸收され易い。)

扱て、かゝる中性子を原子核が吸收して人工放射性元素になるに、次の四つの主なる變換型式がある。

(1a) n, γ 反應 γ -線放出を伴ふ中性子補獲。Z は變らず、A が 1 つ増加する。

(1b) n, p 反應 陽子放出を伴ふ中性子補獲。Z が 1 つ減少、A は變らず。

(1c) n, α 反應 α -粒子放出を伴ふ中性子補獲。Z が 2 つ減少、A が 3 つ減少する。

(1d) $n, 2n$ 反應 二個の中性子放出を伴ふ中性子補獲。Z は不變、A が 1 つ減少す。

(n, γ) 反應と ($n, 2n$) 反應は受撃元素と同位の放射性元素が得られるから、Sailard-Chalmer の濃縮法(後述)を用ふれば、不活性物質の活性化に都合がよく比活性の高いものが得られる。

* 核反應式 ${}_4\text{Be}^9 + {}_2\text{He}^4 (\alpha) \rightarrow {}_6\text{C}^{12} + {}_0\text{n}^1$ の代りに簡単に $\text{Be}^9 (\alpha, n) \text{C}^{12}$ とする。n=中性子 (${}_0\mu^1$), α = α -粒子 (${}_2\text{He}^4$), p=陽子 (${}_1\text{H}^1$), d=重陽子 (${}_1\text{D}^2$), γ = γ -線。

** Mev.=million electron volts (10^6 ev.).

1 ev.= 1.59×10^{-12} ergs (一個の電子の電荷が 1 volt 落ちるに要するエネルギー)。

(n, p) (n, α) 反應では比活性を高める爲には多量の物質を有効的に用ひねばならぬ。 $(n, 2n)$ 反應により生成した放射性元素は主として陽電子放出體であり、他のものは主として負の β -粒子放出體である。

(n, γ) 反應は主として遅い中性子に起り、速い中性子では極く少數の場合に限る。この方法では週期表中の全領域のすべての元素が活性化される。かゝる遅い中性子の吸収の断面積は各元素及び各同位元素に對し全く不規則で、或る元素(例へば Cd)では甚だ大である。 (n, p) 及 (n, α) 反應は二三の軽い元素を除いては、速い中性子により起る。これに要するエネルギーは週期表の順に大となる。なんとすれば逃避する荷電粒子(p 及 α)は核のポテンシャル障壁を越えねばならぬから、原子番號 50 以上では甚だ速い中性子に依らねばならぬ。 $(n, 2n)$ 反應は甚だ速い中性子を必要とする。なんとすれば中性子の結合エネルギーは多くの元素に就いて約 8 Mev. であり、中性子の放出にはこれ以上のエネルギーを要する爲である。

(1c) (n, n) 反應 速い中性子による活性化反應の今一つの型式に (n, n) 反應がある。それは捕獲された中性子の運動エネルギーにより放射性の高位の核異性體を生じ、中性子は活性化過程の後減少したエネルギーを以つて再び放出される。このよき例は $_{49}\text{In}^{115}(n, n)_{49}\text{In}^{116m}$ (* 安定核の放射性異性體を示す)である。

2. 重陽子反應

一般に最も強い放射能はサイクロトロンにより加速された高エネルギーの重陽子の衝撃により得られる。現今働いてゐる多くのサイクロトロンでは 5~10 Mev. エネルギーの重陽子を 10~200 microamp. の電流にて發生し得る。Berkeley の 60 inch サイクロトロンは 16 Mev. 100~200 microamp. である。もつと低いエネルギーの重陽子と與へる他の装置によつては、弱い放射能が導き得られる。

人工放射性元素を得る主なる變換型式は次の如くである。

(2a) d, p 反應 陽子放出を伴ふ重陽子補獲。Z は不變, A が 1 つ増加する。

(2b) d, n 反應 中性子放出を伴ふ重陽子補獲。Z が 1 つ増加す, A は不變。

(2c) d, α 反應 α -粒子放出を伴ふ重陽子補獲。Z が 1 つ減少, A が 2 つ減少す。

これらの反應により得られた放射性元素は正又は負の β -粒子放出體である。いづれの反應の收量も重陽子のエネルギーと共に増加し、一定の重陽子エネルギーに際しては受撃元素の原子番號と共に減少する。この減少は (d, α) 反應に就いて著しい。それは荷電した α -粒子が核のクーロム障壁を通過せねばならぬ爲にて、例へば 8 Mev. の重陽子を用ふれば (d, p) 及 (d, n) 反應は週期表上すべての範圍に起るが、 (d, α) 反應は原子番號 50 以上では起らない。

(2d) $d, 2n$ 反應 二個の中性子放出を伴ふ重陽子補獲。Z が 1 つ増加, A は不變。

16 Mev. 以上の高エネルギーの重陽子に起る。 (d, γ) (d, d) 反應は確定されてゐない。

重陽子で得られる強い放射性物質の二三の例を挙げる。8 Mev., 20 microamp. の重陽子で 20 分間銅に衝撃すると、反應 $\text{Cu}^{63}(d, p)\text{Cu}^{64}$ により約 5 millicuries もの Cu^{64} (12.8 hr.) が得られる。かゝるものゝ電離度の放電速度は自然數 (natural-background) の約 10^7 倍に相當する。又 16 Mev. 100 microamp. 重陽子を 4 時間隣に衝撃すれば、反應 $\text{P}^{31}(d, p)\text{P}^{32}$ により 50 millicuries の P^{32} (14.3 日即ち 1.24×10^6 秒) が得られる。變脱關係式 $-dN/dt = \lambda N$ (茲に、 $-dN/dt$ は 1 秒間に變脱する原子數、變脱常數 $\lambda = 0.69/\text{半減期}$) により活性な原子の數 N を求むるに $3.7 \times 10^{10} \times 0.05 \times 1.24 \times 10^6 / 0.69 = \frac{1}{3} \times 10^{16}$ にて、これは $\frac{1}{10}$ microgram の放射性 P^{32}

に相當する。従つて長生命の變換生成物が秤量し得る程度に得られる日も遠くないだろう。

3. α -粒子 (He-イオン) 反應

電場にて加速された He イオンは全く天然放射性元素より放出される α -粒子と等しい。しかし人工的 α -粒子による人工放射性元素は、その強さが大なる爲め人工放射性元素の生成に對しては天然の α -粒子と大いに異なる。例へば 100 mg Ra は 1 秒間に約 10^{10} 個の α -粒子を各方向に放出するが、1 microamp. の人工 α -粒子は受撃物に直角の方向では 10^{13} 個に相當する。重陽子と He-イオンと略同一の e/m の値を有するから、サイクロトロンが重陽子に用ひられた如く α -粒子にも用ひられる。しかも α -粒子は重陽子の二倍の質量を有するから、同一電壓により同一速度に加速されても二倍のエネルギーを有する事となる。従つて普通の場合 10~16 Mev. の α -粒子が得られる。

主なる核反應は次の如きものである。

(3a) α, n 反應 中性子放出を伴ふ α -粒子捕獲。Z が 2 つ増し、A が 3 つ増す。

(3b) α, p 反應 陽子放出を伴ふ α -粒子捕獲。Z が 1 つ増し、A が 3 つ増す。

負又は正の β -粒子放出體が得られる。收量は α -粒子のエネルギーと共に増加し、一定エネルギーでは原子番號と共に減少する。16 Mev. の α -粒子では (α, n) 反應は週期表の全領域の元素に起るが、(α, p) 反應は原子番號 50 以上では稀である。

(3c) $\alpha, 2n$ 反應 二個の中性子放出を伴ふ α -粒子捕獲。Z も 2 つ、A も 2 つ増す。

(3d) α, pn 即ち α, d 反應 陽子と中性子即ち重陽子放出を伴ふ α -粒子捕獲。Z が 1 つ増し、A が 2 つ増す。兩者共 32 Mev. の高エネルギーの α -粒子により起る事が觀測された。(3e) α, α 反應は (α, n) 反應より低いエネルギーで起るべきであるが、未だ見出されてゐない。

(3e) α, α 反應 上述のものと異つた活性化方法である。 α -粒子の電場と核との相互作用の結果活性化されるもので、(n, n) 反應の如く衝擊粒子の捕獲及び再放出によるものでないと考へられる。⁵⁹⁾

4. 陽子反應

重陽子や α -粒子と全く同様にサイクロトロンは陽子に高エネルギーを與へ得る。多くの研究家、特に Du Bridge 一派は高エネルギー陽子の衝擊により多くの人工放射性元素を作つた。

(4a) p, n 反應 中性子放出を伴ふ陽子捕獲。Z が 1 つ増し、A は變らない。

最も普通の反應にして、主として陽電子放出 (即ち K -電子捕獲) の放射性元素を生ずる。收量は陽子のエネルギーと共に増加し、受撃元素の原子番號と共に減少する。6.5 Mev. の陽子では週期表の全領域の元素の變換が見られた。若しこの反應で出来た放射性元素が陽電子を放出して受撃元素にもどる場合、この反應のエネルギー閾 (energy threshold) は、中性子と水素との質量の差 (0.8 Mev.) と二個の電子質量 (1.0 Mev.)、と放射體よりの陽電子スペクトルのエネルギー上限、との三つの和に等しい。若し K -電子捕獲により減衰する場合は、エネルギー閾は零エネルギー陽電子の放出體の生成に要する値より 1 Mev. 低い。

(4b) p, γ 反應 γ 線放出を伴ふ陽子捕獲。Z も A も 1 つ増加する。

極く軽い元素と少量の中位の元素 (Z=30) に觀察される。この反應は (p, n) 反應に對するエネルギー閾附近、もしくはそれより低いエネルギーの際に重要となる。この反應の收量特

に甚だ軽い元素に対しては、陽子の或る特定のエネルギーに鋭い極大が存在する。即ち共鳴(resonance level)がある。

(4c) p, α 反應 α -粒子放出を伴ふ陽子捕獲。Z が1つ減少, A が3つ減少す。
極く少数報告されてゐるが、高エネルギーの陽子に就いてのみ信頼される。同様に高エネルギーでは ($p, 2n$) 反應が期待される。

(4d) p, p 反應 (n, n) 及 (α, α) 反應と同様に陽子の運動エネルギーを利用して核を活性化し得る。

5. γ -線反應

(5a) γ, n 反應 中性子の放出を伴ふ γ -線吸収。Z は不變, A が1つ減少。

光變脱 (photo-disintegration) とし知られるものである。Bothe 及 Gentner⁽⁵⁹⁾ は ($H+Li$) 反應により放出される 17 Mev. の γ -線及び ($H+B$) 反應の 12 Mev. の γ -線によりこの反應を研究し、その收量が各元素により區々である事を見出した。主として陽電子放出體が生成されるが、收量は低い。非常に高いエネルギーの γ -線を得る反應は 1 Mev. 以下の電壓で起る共鳴型のものであるから、直接加速型の装置が適當である。

高エネルギーの γ -線もある種の安定な核をその放射性状態に活性化すに用ひられる。例へば In, Pb. この種の活性化は高エネルギーの電子による衝撃によつても起し得られる。⁽⁶⁰⁾

6. ウラニウム及びトリウム分裂

1939年1月に Hahn 及 Strassmann⁽⁶¹⁾ は、ウラニウムを遅い又は速い中性子にて衝撃すると中間的原子量を有する一對の放射性生成物が出来ると言ふ甚だ重要な發見を報告した。この全く新しい型の核反應の存在は、直ちに世界中の多くの研究所に於いて確かめられた。この過程は Meitner 及 Frisch⁽⁶²⁾ により分裂 (fission) なる名稱が與へられ、分裂生成物の化學的決定が多くの人々によりなされた。續いてトリウム⁽⁶³⁾ も速い中性子により、又プロトアクチニウム⁽⁶⁴⁾ も同様に (この場合は遅い中性子が有効) 分裂する事が分つた。ウラニウムやトリウムの如き重元素の原子核は中性子と陽子との比が大であるから、分裂生成物のそれも非常に大である。従つてすべて負の β -粒子放出體を生じ、連鎖減衰が起る。(核分裂に關しては Turner⁽⁶⁵⁾ の綜説がある。本誌 13 卷 108 頁参照⁽⁶⁶⁾) この方法により作られる放射性同位元素の或るものは他の方法では作られなく、(例へば Br^{82} (3.3 hr.), Kr^{89} , Sr^{90} , $Sb^{127, 128}$, Ba^{140}) 又或るものは上述の他の方法により得られるが (例へば Br^{83} (140 min.), Kr^{88} , Ag^{112} , Cd^{117})、既に化學或ひは生物學の問題に應用されてゐる。

かくの如き重元素分裂の發見に至るまでには興味ある歴史的經過がある。Fermi 一派⁽⁷⁾(1935) はその最初の研究にて既に U を中性子にて衝撃し一列の放射性物質を得てをり、彼等はそれらを原子番號92より大きな元素、即ち超ウラン元素 (transuranic elements) と名付けた。Hahn, Meitner 及 Strassmann⁽⁶⁷⁾ 等の實驗によりこれが確かめられ、その後數年超ウラン元素はこの方面の實驗、並びに議論の中心となつてゐた。⁽⁶⁸⁾ 1938年 Curie 及 Savitch⁽⁶⁹⁾ は稀土類元素の化學的性質を有する半減期 3.5 時間の生成物を得たが、詳細な研究を缺いた爲め、惜しくも分裂現象の發見を前記 Hahn 及 Strassmann に譲つた。即ち彼等により U の中性子により出来るものが放射性的 Ba 同位元素である事が解り、超ウラン元素と考へられてゐたものがすべて分裂生成物である事が解つた。現今では 50 以上の放射性分裂生成物が知られてゐる。

重陽子⁷⁰⁾及び高エネルギーの γ -線⁷¹⁾による U 及び Th の分裂も観測されてゐる。

U-分裂に際して二次的中性子が放出される事が von Halban, Joliot 及 Kowarski⁷²⁾ により示され、多くの研究家により確かめられた。⁷³⁾ この第二の中性子は更に分裂を起すと考へられるから、適当な条件での連鎖分裂の可能性が多くの人の議論の對稱となつてゐる。分裂の巨大なエネルギー (~200 Mev.) を考へれば、かかる連鎖は短時間に驚くべき量のエネルギーの放出が期待されるのである。

尚ほ以上すべての反應に就いて原子番號 (Z) 及び質量數 (A) の増減を表示すれば第一表の如くである。

第 一 表

| 反 應 型 | Z の増減 | A の増減 | 主なる放射線 | 例 |
|--------------------------|-------|-------|------------------------|---|
| n, γ | 0 | +1 | β^- | $_{11}\text{Na}^{23} (n, \gamma) _{11}\text{Na}^{24}$ |
| n, p | -1 | 0 | " | $_{17}\text{Cl}^{35} (n, p) _{16}\text{S}^{35}$ |
| n, α | -2 | -3 | " | $_{13}\text{Al}^{27} (n, \alpha) _{11}\text{Na}^{24}$ |
| $n, 2n$ | 0 | -1 | β^+ | $_{29}\text{Cu}^{63} (n, 2n) _{29}\text{Cu}^{62}$ |
| n, n | 0 | 0 | (I. T) | $_{47}\text{Ag}^{107} (n, n) _{47}\text{Ag}^{107*}$ |
| d, p | 0 | +1 | β^- or β^+ | $_{29}\text{Cu}^{63} (d, p) _{29}\text{Cu}^{64}$ |
| d, n | +1 | 0 | " | $_{38}\text{Sr}^{88} (d, n) _{39}\text{Y}^{88}$ |
| d, α | -1 | -2 | " | $_{28}\text{Ni}^{58} (d, \alpha) _{27}\text{Co}^{56}$ |
| $d, 2n$ | +1 | 0 | " | $_{26}\text{Fe}^{56} (d, 2n) _{27}\text{Co}^{56}$ |
| α, n | +2 | +3 | β^- or β^+ | $_{45}\text{Rh}^{103} (\alpha, n) _{47}\text{Ag}^{106}$ |
| α, p | +1 | +3 | " | $_{20}\text{Ca}^{40} (\alpha, p) _{21}\text{Sc}^{43}$ |
| $\alpha, 2n$ | +2 | +2 | β^+ | $_{83}\text{Bi}^{209} (\alpha, 2n) _{85}\text{At}^{211}$ |
| $\alpha, pn (\alpha, d)$ | +1 | +2 | " | $_{16}\text{S}^{32} (\alpha, d) _{17}\text{Cl}^{34}$ |
| α, α | 0 | 0 | (I. T) | $_{49}\text{In}^{115} (\alpha, \alpha) _{49}\text{In}^{115*}$ |
| p, n | +1 | 0 | β^+ | $_{55}\text{Cs}^{133} (p, n) _{56}\text{Ba}^{133}$ |
| p, γ | +1 | +1 | " | $_{6}\text{C}^{12} (p, \gamma) _{7}\text{N}^{13}$ |
| p, α | -1 | -3 | " | $_{7}\text{N}^{14} (p, \alpha) _{6}\text{C}^{11}$ |
| p, p | 0 | 0 | (I. T) | $_{49}\text{In}^{115} (p, p) _{49}\text{In}^{115*}$ |
| γ, n | 0 | -1 | β^- or β^+ | $_{15}\text{P}^{31} (\gamma, n) _{15}\text{P}^{30}$ |
| (X-ray) | 0 | 0 | (I. T) | $_{49}\text{In}^{115} (\text{X-ray}) _{49}\text{In}^{115*}$ |
| fission | | | β^- | $_{92}\text{U} (n) _{35}\text{Br}^{83}$ |

(+: 増, -: 減, 0: 増減なし)

[IV] 人工放射性物質の分離並びに濃縮法

(A) 遷移體を用ひる化學的分離法

人工放射性元素の化學的分離の基礎は、(1)原子番號を同じくする同位元素は普通の化學反應では互に分れない、(2)放射性同位元素はその元素の安定な同位元素と同様な舉動をする、と言ふ二點に置いてゐる。放射能の性質は、それが甚だ強い場合以外は化學的操作により影響されない、従つて變換により新しい不安定な核が生成された後、新しい原子は新しい原子番號により決定される性質を有し、化學的には總ての點でその安定同位元素と同一の

舉動をする。例へば Mn^{55} (p, n) Fe^{55} で出来た Fe^{55} (~ 4 年) は普通の Fe と同様の、 Mn^{55} (α, n) Co^{58} で出来た Co^{58} (72日) は普通の Co と同様の舉動をする。多くの場合變換生成物の原子の数は僅か數百萬であり、かゝる低い濃度の元素の舉動は種々の化學的操作に對し不正確である。この理由により變換生成物の化學的分離には、期待された、もしくは豫期される變換生成物と同位の元素の少量を加へる事が普通用ひられ、又しばしば用ひねばならない。この添加する物質が遞傳體 (carrier) と呼ばれる。遞傳元素が化學的に分離され、それに就いて放射能を検し、その半減期よりして遞傳元素と同位の放射性元素の符號が決定し得る。

(a) 受撃元素と同位でない放射性元素の場合。

多くの場合、生成された放射性元素は元の元素と同位でないから、極く少量の遞傳體を加へ分離する事により放射能は少量の物質中に濃縮し得る。かゝる比活性度の高い遞傳體は放射性元素の應用特に生物學又は生化學的研究に對して甚だ望ましい事である。比活性度 (specific activity) とは放射性原子の數とそれに加へられた同一同位原子の數との比を云ふ。

(b) 受撃元素と同位の放射性元素の場合 (Szilard-Chalmers 法)。

若し、生成された放射性元素が受撃元素と同位體である場合には、この活性同位體は當然多量の不活性同位體と混じてゐる。しかし、場合によつては活性元素を不活性元素と分ける事が出来て、少量の物質に濃縮し得る。Szilard 及 Chalmers⁷⁰ (1934) は初めてかゝる分離を行つた。彼等は沃化エチルの如きイオン化しない有機物に中性子を衝擊して、 $(I^{127} (n, \gamma) I^{128})$ 及 $I^{127} (n, 2n) I^{126})$ 出来た活性な沃素 I^{128} (25 min.) 及 I^{126} (13 days) を普通の沃素と分離した。即ち中性子照射後、活性沃素(遊離してゐる)の遞傳體として少量の遊離沃素を加へ、この沃素を還元後沃化銀として沈澱せしめたるに、殆んど總ての放射能はこの沈澱に移されてゐる事を見出した。その後、この濃縮法は種々の他の放射性元素にも應用され、Szilard-Chalmers 方法と呼ばれてゐる。この方法の遂行し得る原因は、新らしく生成された放射性元素の原子核が中性子捕獲により放出される γ -線によつて反撥 (recoil) され、その化合してゐた分子より離れる事にある。(詳細は後述) この方法は中性子捕獲により出来る放射性物質のみに限らず、理論的には總ての活性化方法に用ひられる。勿論、遊離した放射性原子と照射を受けてゐる化合物中の同位の原子との置換が起らない事が必要である。この應用例として放射性の沃素、臭素及び鹽素がその有機又は無機化合物より濃縮された。同様に、過マンガン酸鹽溶液を照射する事により沈澱する二酸化マンガンを大部分の放射性マンガンが移される。何れにしてもこの方法は遊離した放射性原子が元のものと置換しない化合物に用ひられるが、比活性度の高い放射性元素を得るに便利である。

尚ほこの方法は次の人々により用ひられ大いに發展した。

Erdacher 及 Philipp⁷¹ は種々の有機のハロゲン化合物 (C_2H_5I , C_2H_5Br , C_2H_5Cl , 等) に中性子を照射し、その水溶液をベンゾールにて抽出した。放射性のハロゲンのみが水溶液に残り、その濃縮度は例へば Br では 10^{17} 倍にもなつた。

Lu 及 Sugden⁷² は種々有機ハロゲン化物 ($n-C_4H_9I$, C_6H_5I , C_2H_5Br , $n-C_4H_9Br$, C_6H_5Br , C_6H_5Cl , CCl_4) 及び種々の抽出溶液 (H_2O , 5% HCl , 15% $NaOH$, 5% $Na_2S_2O_3$) を用ひて定量的研究を行つた。放射性 I は主として遊離元素として分離されるが、 Cl や Br は陰イオンとして抽出してゐる。しかして照射前にハロゲン化物に少量のアエリン (4%) を添加する事により收量が増加し、例へば Br では濃縮係數 30,000 が得られた。

Roginsky 及 Gopstein⁷⁷⁾ は放射性 Br の抽出に酸化アルミニウム及び活性炭を吸着剤として用いた。

Majer⁷⁸⁾ は活性な Au の分離にコロイド状の金を用いた。即ち金の複鹽 (Na-Au-thiosulphate) に強アルカリ性の鹽化金 (0.05~0.5 mol) を還元して作った金のコロイド液を加へ、それに中性子を照射すると放射性の金が遊離すると同時にコロイド金は凝結する。それを遠心機で分離すると沈澱と溶液の活性の比は約 8:1 となつた。

最近 Cooley 及 Yost⁷⁹⁾ は放射性 S^{35} , Hull⁸⁰⁾ は放射性 P^{32} の抽出を行つた。

(c) 放射性核異性體の分離。

核異性體の化學的分離にも *Szilard-Chalmer* 方法が少しく改良して用ひられる。エネルギー上位状態の放射性の元素を *Szilard-Chalmer* 濃縮法に適した化合物にすれば、それより異性體變換により生ずる基本状態の放射性の娘元素はその母元素より化學的に分離し得る。

Segrè, Halford 及 Seaborg⁷⁹⁾ は *tertiary butyl bromide* として存在する放射性の母元素 Br^{80} (4.4 hr.) より *hydrobromic acid* の型で放射性の娘元素 Br^{80} (18 min.) を分離した。

De Vault 及 Libby⁸⁰⁾ は Br^{80} (4.4 hr.) が *bromate* として存在するアンモニア性溶液より $AgBr$ の沈澱として Br^{80} (18 min.) を分離した。

Le Roux, Lu 及 Sugden⁸¹⁾ も *ethylene dibromide* 及び *n-butyl bromide* より $AgBr$ の沈澱として分離した。

Willard⁸²⁾ は Br^{80} (18 min.) と CCl_4 との反應を利用し Br 溶液を CCl_4 で抽出する事により分離した。

Langsdorf 及 Segrè⁷⁹⁾ は $Se^{79, 81}$ (57 min.) とその核異性變換により生ずる $Se^{79, 81}$ (19 min.) との分離を行つた。その方法は放射性の *selenic acid* と鹽酸とを混じ酸性 (4N になる) にし、その液を SO_2 で飽和する。かゝる條件の下で *selenic acid* を徐々に還元すれば、*selenious acid* は Se に速かに還元される。従つて上の液に時々 *selenious acid* を加へ遊離する Se を濾過により集めた。これに $Se^{79, 81}$ (19 min.) が集る。この方法は Se の核異性變換が起れば *selenic acid* の分子が *selenious acid* の分子に變化する事を利用するにある。

Seaborg, Livingood 及 Kennedy⁸³⁾ は同様な方法で Te の核異性體の分離を行つた。 Te には三對の核異性體がある。 Te^{127} (90 days) \rightarrow Te^{127} (9.3 hr), Te^{128} (32 days) \rightarrow Te^{128} (72 min) 及 Te^{131} (30 hr) \rightarrow Te^{131} (25 min) である。その方法も核異性變換に際して *telluric acid* の分子が *tellurous acid* の分子になる事を利用するから、先づ *telluric acid* を次の如くにして作つた。化學的に純粹にした放射性の *tellurium* を硝酸に溶かし、*silver tellurite* として沈澱し、それを水に浮泳せしめ臭素水で *telluric acid* に酸化した。過剰の臭素を煮沸で追出し $AgBr$ を濾過し純な *telluric acid* を作つた。この *telluric acid* の溶液に不活性の *sodium tellurite*, *iodine* 及 *sodium iodate* の少量を運傳體として加へる。先づ Te より生ずる I^{131} (8 days) が遊離するのでそれを *chloroform* で抽出す。残りの液に鹽酸を加へ 3N として、 SO_2 にて還元して *telluric acid* はそのままで、*tellurous acid* のみ *tellurium* に還元する。この *tellurium* 沈澱中には遊離した娘異性體(一つ又はそれ以上)を有し、母異性體は殆んど含んでゐない。

(d) 放射性元素の安定同位體がない場合。

變換生成物が天然に未だ發見されてゐない、又は甚だ稀なる元素の同位體である場合には放射性同位體の運傳體が用ひられなく化學的分離はより困難となる。

Perrier 及 Segre⁸⁰⁾ は Mo の重陽子衝撃により 43 番目の元素と同位の放射性元素を得たが、その化学的決定に週期表で同属にて、43 と等しい化学的性質を有すると考へられる Re を用ひて行つた。

Corson, Mac Kenzie 及 Segre⁸¹⁾ は Bi に α -粒子 (32 Mev.) 衝撃により得られた放射性の變換生成物 (85 番目の元素) を分離するに、遷傳體として I を用ひた。

Mc Millan 及 Abelson⁸²⁾ は U の中性子衝撃により生じた放射性元素が 93 番目の元素でなければならぬ事を種々の化学的實驗により證明せんとした。

Szilard-Chalmers の化学的分離法の詳細な議論は後に述べる。(VII (3) 参照)

(B) 遷傳體を用ひない分離法(物理的)。

變換生成物が受撃元素と同位でない場合には遷傳體を用ひないで分離する事が出来る。この方法は純粹な放射性元素又は化合物として得られる。勿論、その量は甚だ少にて、放射能に依つてのみ検出出来る場合が多い。この分離に際しては種々の物理的及び化学的性質が利用されるが、その主なるものを次に述べる。

(a) 電気化学的性質の差の利用。

Haissinsky⁸³⁾ は Zn の中性子衝撃により生ずる $(Zn^{64} (m, p) Cu^{64})$ 放射性銅 Cu^{64} (12.8 hr.) を鉛上に電気的に析出せしめて分離した。即ち、8—12 gm の Zn に中性子を照射し、濃鹽酸で 200—300 mg の残滓になるまで溶かしたるに、放射性は殆んど残滓に残つた。この残滓を更に濃鹽酸で溶かし、2 倍に稀薄してその液に一面を絶縁物で蔽つた Pb 板を浸したるに、30 分後半分以上の放射性 Cu のみが析出した。かくの如く放射性元素が受撃元素より電気化学的に貴なるものにはその中間的元素との電気化学的交換により分離し得る。

Steigman⁸⁴⁾ は同じ分離を電解電着により行つた。90 gm Zn に中性子を照射し、濃鹽酸で 5 gm まで溶かす。この放射性銅の止まる残滓を 30—40 cc. の濃硫酸で溶かし、400 cc. に稀薄し、一度濾過してその液を速かに廻轉する Pt, Cu 等の電極にて 2.1—2.7 volts, 10—18 milliamp で電解した。

(b) 溶媒への分配率の差の利用。

溶媒間の分配を利用しても遷傳體を用ひずに放射性元素を純粹に分離し得る。

Graham 及 Seaborg⁸⁵⁾ は Zn を 8 Mev. 重陽子で衝撃した後、6N 鹽酸で溶かし、25 cc. ether と置れば、生じた放射性 Ga のみが鹽化物として抽出された。同様な方法で放射性 Mn 及び Co をその母體の Fe より分離した。

(c) 沸點の差の利用。

沸點に大きな差のある場合には、それにより分離し得る。例へば、變換生成物が放射性の瓦斯體であれば、容易に瓦斯でない受撃元素より分離され得る。

Alvarez, Helmholtz 及 Nelson⁸⁶⁾ は實際に、中性子を照射した Ag を殆んどその融點まで熱し、その時出る蒸氣を集める事により生成した放射性 Cd (6.7 hr.) を純粹に得た。

(d) 不溶性の利用。

放射性の變換生成物が不溶性の物質であれば、天然の放射性物質に多く用ひられた如く^{81, 82)} 目に見えてゐないがその沈澱を遠心機により器壁に集められると思ふ。

(e) 荷電の利用。

捕獲過程に γ -線を放出する場合には、その γ -線による反撥の結果新らしく生成された放射

性原子は生成の瞬間に核外電子の一個又は數個を失ふものである。従つてかゝる荷電原子は、氣相或ひは液相にてもその衝撃中に電場により集められ得る。この方法は放射性生成物が受撃元素と同位である場合にも應用出来る。

Fermi⁷⁾等は約1立の硝子製圓筒に *metyl* 又は *ethyl iodide* の飽和蒸氣を満たし、それを水中に浸し低速中性子 (Ra-Be 源) を照射した。硝子製圓筒には壁に沿つて圓筒形の Al 極とその中心に Ni 極があり、兩極に 3000 volts の電壓をかけ Ni 極に集る活性度を檢した。(結果は餘り面白くなかつた。)

Paneth 及 Fay⁸⁾ は *ethyl iodide* (液相) に中性子 (30 mg. Ra-Be) を照射して生ずる活性の I^{128} を電解により Cu 又は Ag の陽極に集めた。同様に *methyl* 又は *butyl iodide* より活性 I を、*ethyl*, *butyl*, *methylene* 及 *ethylene bromide* より活性 Br を濃縮した。又 Ag 製のフラスコに *arsine* (氣相) を満たし、Pt 極との間に 1300 volts をかけ、中性子捕獲により出来る ($As^{75} (n, \gamma) As^{76}$) 活性の As^{76} (26.8 hr.) を集めた。この濃縮比 (As^{76}/As^{75}) は 20,000 にも及んだ。

Govaerts⁹⁾ は CS_2 に溶かした黄燐に中性子 (120 mg Ra-Be) を照射し ($P^{31} (n, \gamma) P^{32}$ 及 $S^{32} (n, p) P^{32}$) 生成する放射性の P^{32} (14.3 days) を Cu 電極に集めたるに電極が沈澱の爲め黒くなつた。又 90 volts/cm, 9 日行ふと電極の重量が 3.7 mg 増加したと報告してゐる。この方法と異なるが、水と共に加熱する方法により、Erbacher¹⁰⁾ は CS_2 に高速中性子を衝撃して出来る高活性の P^{32} を多量に抽出してゐる。(これは中性子衝撃によるが、加速重陽子衝撃によるも放射性 P^{32} が殆んど秤量し得る程出来たことは前に述べた(7頁)。)

この他、荷電粒子の衝撃により生ずる反撥放射性原子の集積によつても濃縮出来る。例へば Snell¹¹⁾ は $Ar^{40} (d, p) Ar^{41}$ により生ずる放射性 Ar^{41} (11 min.) の分離に應用した。

[VI] 人工放射性元素表

人工放射能に関する表は種々の物理雑誌^{9, 10, 11)}に記載されたが、Livingood 及 Seaborg¹²⁾ の表(1939年末まで集録)が本誌14巻143頁に轉載されてゐるからそれを参照され度い。尚ほ、本紹介の Seaborg¹¹⁾ の表(1940年7月まで)とそれを比較するに、僅か半ヶ年の間に約40個の新放射性元素が附加され、その他約半数は半減期又は其の他の項が訂正されてゐる。新らしく附加されたもののみを次表に擧げてをく。(記號は前者と同様)其の後更に多數の放射性元素の發見がなされてゐると思はれる。(續く)

第 二 表

| Radio-element | | Class | Type of Radiation | Half-life | Energy of radiation in Mev. | | Produced by |
|---------------|-----------|-------|-------------------|-----------------|-----------------------------|----------------|------------------|
| Z | A | | | | Particles | γ -Rays | |
| 4 | Be^{10} | A | β, γ | $\geq 10^3$ yr. | ~ 0.5 abs. | > 0.5 abs. | Be-d-p |
| 6 | C^{10} | A | β | 8.8 sec. | 3.4 cl. ch. | | B-p-n |
| | C^{14} | A | | $\geq 10^5$ yr. | 0.090 abs. | | C-d-p N-n-p |
| 11 | Na^{24} | B | | 23 sec. | | | Ne-p-n Ne-d-n |
| 15 | P^{32} | A | | > 10 sec. | | | Si-p-n |

No. 1

水渡、人工放射能の化学への應用(其一) (紹介)

15

| | | | | | | | |
|----|---------------------------|---|---------------------|-----------------|--------------------|---------------------------|---|
| 17 | Cl^{33} | A | | 2.8 sec. | | | S-d-n |
| 24 | Cr^{55} | B | | 1.6—2.3 hr. | | | $\text{Cr-n-}\gamma$ |
| | | | | | | | Cr-d-p |
| 36 | $\text{Kr}^{70,81}$ | C | $I.T., e^-, \gamma$ | 13 sec. | 0.187 spect. conv. | | Br-p-n |
| | $\text{Kr}^{70,81}$ | C | $I.T., e^-, \gamma$ | 55 sec. | 0.127 spect. conv. | | Br-p-n |
| | Kr^{89} | B | β^- | ~ 2 min. | | | Se-a-n (?) |
| | Kr^{90} | D | β^- | > 0.5 min. | | | U-n |
| | | | | | | | U-n |
| | | | | | | | Th-n |
| 37 | Rb^{82} | B | | 20 min. | | | Br-a-n |
| | Rb^{84} | B | | 6.5 hr. | | | Br-a-n |
| | | | | | | | Kr-d-n |
| | Rb^{89} | B | β^-, γ | 15 min. | 3.8 abs. | | $\text{Kr}^{89} \beta^- \text{ decay}$ |
| | Rb^{90} | D | β^- | 80 sec. | | | $\text{Kr}^{90} \beta^- \text{ decay}$ |
| 40 | Zr^{93} | D | β^- | 63 days. | ~ 0.25 abs. | | $\text{Zr-n-}\gamma$ |
| | | | | | | | Zr-d-p |
| | | | | | | | Mo-n-a (?) |
| | Zr^{95} | D | β^- | 17.0 hr. | 1 abs. | | U-n |
| | | | | | | | $\text{Zr-n-}\gamma$ |
| | | | | | | | Mo-n-a |
| | Zr^{97} | E | β^- | 6 min. | ~ 1.9 abs. | | $\text{Zr-n-}\gamma$ |
| | Zr | D | β^- | 20 days. | ~ 0.25 abs. | | U-n |
| 41 | Cb^{93} | D | $I.T., e^-$ | ~ 55 days. | | ~ 0.15 abs. of e^- | $\text{Zr}^{93} \beta^- \text{ decay}$ |
| | Cb^{95} | D | β^- | 75 min. | 1 abs. | | $\text{Zr}^{95} \beta^- \text{ decay}$ |
| | | | | | | | Mo-n-p |
| 43 | 43^{101} | B | β^- | 9 min. | 1.1 cl. ch. | | $\text{Mo}^{101} \beta^- \text{ decay}$ |
| 47 | $\text{Ag}^{107}, ^{109}$ | C | $I.T., e^-$ | 40 sec. | | 0.093 spect. conv. | $\text{Cd}^{107, 109} K \text{ decay}$ |
| 48 | $\text{Cd}^{107, 109}$ | C | K^- | ~ 90 days. | | | Ag-n-n |
| 49 | In^{114} | A | β^- | 72 sec. | 1.98 cl. ch. | | Ag-d-2n |
| | | | | | | | $\text{In}^{104} (48 \text{ days}) I.T.$ |
| | | | | | | | In-n-2n |
| | | | | | | | $\text{In-}\gamma\text{-n}$ |
| | | | | | | | Cd-p-n |
| 54 | Xe^{127} | B | $I.T., e^-, \gamma$ | 75 sec. | | 0.175, 0.125 spect. conv. | I-p-n |
| | Xe^{127} | B | e^-, γ | 34 days. | | 0.9 abs. of e^- | I-p-n |
| | Xe | D | β^- | < 0.5 min. | | | U-n |
| | | | | | | | Th-n |
| 55 | Cs | D | β^- | 40 sec. | | | $\text{Xe} (> 0.5 \text{ min.}) \beta^- \text{ decay}$ |
| 56 | Ba^{133} | A | e^-, γ | 30 hr. | | 0.30 spect. conv. | Ba-n-2n |
| | Ba | D | β^- | ~ 300 hr. | | | Cs-p-n |
| | | | | | | | $\text{Cs} (40 \text{ sec.}) \beta^- \text{ decay (?)}$ |
| 74 | W^{186} | B | β^-, γ | 77 days. | 0.4—0.5 abs. | | $\text{W-n-}\gamma$ |
| | W^{187} | B | β^-, γ | 23 hr. | 1.1 abs. | | W-n-2n |
| 81 | Th^{204} | B | β^- | 4.23 min. | 1.6 abs. | No γ | $\text{W-n-}\gamma$ |
| | | | | | | | $\text{Th-n-}\gamma$ |

| | | | | | | | |
|----|-------------------|---|-------------------|---------------------|-------------|--------------------------------------|--|
| | Tl^{206} | B | β^- | 1-2 yr. | | | Tl-d-p Tl-n-2n Tl-n-r Tl-d-p Tl-d-n Pb-X-rays |
| 82 | $Pb^{204},^{206}$ | C | α, γ | 52 hr. | | ~ 0.5 abs. of e^- | |
| | Pb* | D | α | 1.6 min. | | ~ 0.3 abs. of e^- | |
| 84 | Po^{211} | A | α | $\sim 10^{-3}$ sec. | 7.5 abs. | | $85^{211} \text{ A}^- \text{ decay}$ |
| 85 | 85^{211} | A | α, K^- | 7.5 hr. | 6 (a), abs. | | Bi-a-2n |
| 92 | U^{237} | B | β^-, γ | ~ 7 days. | 0.26 abs. | | U-n-2n |
| 93 | 93^{239} | A | β^- | 2.3 days. | 0.47 abs. | 0.22, 0.27 spec. conv. and spect. | $U^{239} \beta^- \text{ decay}$ |

文

献

- Seaborg, *Chem. Rev.* 27, 199 (1940).
- Curie and Joliot, *Nature* 133, 201 (1934).
- Cockcroft, Gilbert, and Walton, *Nature* 133, 328 (1934).
- Henderson, Livingston, and Lawrence, *Phys. Rev.* 45, 428 (1934).
- Crane and Lauritsen, *Phys. Rev.* 45, 430 (1934).
- Hafstad and Tuve, *Phys. Rev.* 45, 902 (1934).
- Amaldi, D'Agostino, Fermi, Pontecorvo, Rasetti, and Segrè, *Proc. Roy. Soc. A* 145, 522 (1935).
- Ridenour and Vost, *Chem. Rev.* 18, 457 (1936).
- Livingston and Belhe, *Rev. Modern Phys.* 9, 359 (1937).
- Diebner and Grassmann, *Physik. Z.* 37, 359 (1936); 38, 406 (1937); 39, 469 (1938); 40, 297 (1939); 41, 157 (1940).
- Gregoire, *J. phys. radium.* 419 (1938).
- Livingood and Seaborg, *Rev. Modern Phys.* 12, 30 (1940).
- 本誌, 14, 98 (1940).
- 本誌, 14, 143 (1940).
- Alvarez and Cornog, *Phys. Rev.* 56, 613 (1939).
- Ruben and Kamen, *Phys. Rev.* 57, 549 (1940).
- Sargent, *Proc. Roy. Soc. A* 139, 659 (1933).
- Yukawa and Sakata, *Proc. Phys.-Math. Soc. Japan* 17, 467 (1935); 18, 123 (1936).
- Fermi, *Z. Physik* 88, 161 (1934).
- Weizsäcker, *Naturwiss.* 24, 813 (1936).
- Kurchatow, Kurchatow, Mysowsky, and Roussinow, *Compt. rend.* 200, 1201 (1935).
- Snell, *Phys. Rev.* 52, 1007 (1937).
- Bothe and Gentner, *Naturwiss.* 25, 284 (1937).
- Livingston and Belhe, *Rev. Modern Phys.* 9, 256 (1937).
- Lauritsen and Lauritsen, *Rev. Sci. Instruments* 8, 438 (1937).
- Amaldi and Fermi, *Phys. Rev.* 50, 899 (1936).
- Barnes, *Rev. Sci. Instruments* 10, 1 (1939).
- Montgomery and Montgomery, *J. Franklin Inst.* 229, 585 (1940).
- Hafstad, *Phys. Rev.* 44, 201 (1933).
- Du Bridge and Brown, *Rev. Sci. Instruments* 4, 532 (1933).
- Barth, *Rev. Sci. Instruments* 6, 115 (1935).
- Dunning, *Rev. Sci. Instruments* 5, 387 (1934).
- Geiger, *Physik. Z.* 14, 1129 (1913).
- Geiger and Müller, *Physik. Z.* 29, 839 (1928); 30, 489 (1929).
- Strong, *Procedures in Exper. Physics*, p. 259, Prentice-Hall, New York (1938).
- Hamblin and Johnson, *Phil. Mag.* 24, 553 (1937).
- Olson, Libby, Long, and Halford, *J. Am. Chem. Soc.* 58, 1313 (1936).
- Bale, Haven, and Le Fevre, *Rev. Sci. Instruments* 10, 193 (1939).
- Langsdorf and Segrè, *Phys. Rev.* 57, 105 (1940).
- Seaborg, Kennedy and Wahl, *J. Chem. Phys.* 8, 639 (1940).
- Libby, *Phys. Rev.* 46, 196 (1934).
- Libby and Lee, *Phys. Rev.* 55, 245 (1939).
- Geiger and Klemperer, *Z. Physik* 49, 753 (1928).

- 44) Brubaker and Pollard, *Rev. Sci. Instruments* 8, 254 (1937).
- 45) Feather, *Proc. Cambridge Phil. Soc.* 34, 599 (1938).
- 46) Gentner, *Physik. Z.* 38, 836 (1937).
- 47) Lawson and Tyler, *Rev. Sci. Instruments* 11, 6 (1940).
- 48) Bothe and Becker, *Z. Physik.* 76, 421 (1932).
- 49) Dunworth, *Rev. Sci. Instruments* 11, 167 (1940).
- 50) Wilson, *Proc. Roy. Soc. A* 85, 285 (1911); *A* 104, 1 (1923).
- 51) Allen, *Phys. Rev.* 55, 966 (1939).
- 52) Huffmann and Urey, *Ind. Eng. Chem.* 29, 531 (1937).
- 53) Clusius and Dickel, *Z. physik. Chem.* B44, 397 (1939).
- 54) Beams and Skarstrom, *Phys. Rev.* 56, 266 (1939).
- 55) Kennedy and Seaborg, *Phys. Rev.* 57, 843 (1940).
- 56) Weisskopf and Ewing, *Phys. Rev.* 57, 472 (1940).
- 57) Bohr, *Science* 86, 161 (1937).
- 58) Weisskopf, *Phys. Rev.* 53, 1018 (1938).
- 59) Bothe and Gentner, *Z. Physik.* 112, 45 (1939).
- 60) Collins and Walpman, *Phys. Rev.* 57, 1088 (1940).
- 61) Hahn and Strassmann, *Naturwiss.* 27, 11 (1939).
- 62) Meitner and Frisch, *Nature* 143, 239, 471 (1939).
- 63) Hahn and Strassmann, *Naturwiss.* 27, 89 (1939).
- 64) v. Grosse, Booth, and Dunning, *Phys. Rev.* 56, 332 (1939).
- 65) Turner, *Rev. Modern Phys.* 12, 1 (1940).
- 66) 荒藤, 本誌 13, 108 (1939).
- 67) Hahn, Meitner, and Strassmann, *Ber.* 69, 913 (1936).
- 68) Quill, *Chem. Rev.* 23, 87 (1938).
- 69) Curie and Savitch, *Compt. rend.* 206, 1643 (1938).
- 70) Krishnan and Banks, *Nature* 145, 777 (1940).
- 71) Haxby, Shoupp, Stephens, and Wells, *Phys. Rev.* 58, 92 (1940).
- 72) von Halban, Joliot, and Kowarski, *Nature* 143, 470 (1939).
- 73) 萩原, 本誌 13, 145 (1939).
- 74) Szilard and Chalmers, *Nature* 134, 462 (1934).
- 75) Erbacher and Philipp, *Z. physik. Chem.* A176, 169 (1936).
- 76) Lu and Sugden, *J. Chem. Soc.* 1273 (1939).
- 77) Roginsky and Gopstein, *Physik. Z. Sowjetunion* 7, 672 (1935).
- 78) Majer, *Naturwiss.* 25, 252 (1937).
- 79) Segrè, Halford, and Seaborg, *Phys. Rev.* 55, 321 (1939).
- 80) De Vault and Libby, *Phys. Rev.* 55, 322 (1939).
- 81) Le Roux, Lu, and Sugden, *Nature* 143, 517 (1939).
- 82) Willard, *J. Am. Chem. Soc.* 82, 3161 (1940).
- 83) Seaborg, Livingood, and Kennedy, *Phys. Rev.* 57, 363 (1940).
- 84) Perrier and Segrè, *J. Chem. Phys.* 5, 715 (1937); 7, 155 (1939).
- 85) Corson, Mac Kenzie, and Segrè, *Phys. Rev.* 57, 459, 1087 (1940).
- 86) McMillan and Abelson, *Phys. Rev.* 57, 1185 (1940).
- 87) Haissinsky, *Nature* 136, 141 (1935).
- 88) Steigman, *Phys. Rev.* 53, 771 (1938).
- 89) Grahame and Seaborg, *J. Am. Chem. Soc.* 60, 2524 (1938).
- 90) Alvarez, Helmholtz, and Nelson, *Phys. Rev.* 57, 660 (1940).
- 91) Harrington, *Phil. Mag.* 6, 683 (1928).
- 92) Hahn, *Applied Radiochemistry*. Cornell Univ. Press, New York (1936).
- 93) Paneth and Fay, *Nature* 135, 820 (1935); *J. Chem. Soc.* 384 (1936).
- 94) Govaerts, *Nature* 141, 871 (1938).
- 95) Erbacher, *Z. physik. Chem.* B42, 173 (1939).
- 96) Snell, *Phys. Rev.* 49, 555 (1936).
- 97) Cooley and Yost, *J. Am. Chem. Soc.* 62, 2474 (1940).
- 98) Hull, *J. Am. Chem. Soc.* 63, 1262 (1941).